

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-316578

(43) 公開日 平成7年(1995)12月5日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 1 0 M 167/00				
125/24				
125/26				
129/16				
133/16				

審査請求 未請求 請求項の数6 F D (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平7-137420	(71) 出願人	391002328 エチル・コーポレーション ETHYL CORPORATION アメリカ合衆国バージニア州23219 リッ チモンド・サウスフォースストリート330
(22) 出願日	平成7年(1995)5月12日	(72) 発明者	アンドリュウ・ジー・パペイ アメリカ合衆国ミズーリ州63011マンチエ スター・ラスティツクマナーサークル897
(31) 優先権主張番号	2 4 5 6 0 0	(72) 発明者	ロルフ・ジェイ・ハートレイ アメリカ合衆国ミズーリ州63108セントル イス・ウエストミンスタープレイス4387
(32) 優先日	1994年5月18日	(74) 代理人	弁理士 小田島 平吉
(33) 優先権主張国	米国 (U S)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 潤滑添加剤組成物

(57) 【要約】

【目的】 種々の有利な特性を示す多機能添加剤を記述する。

【構成】 同時に或はいずれかの順で、a) 塩基性窒素を含んでいる油溶性無灰分散剤と、b) アルコキシ化アルコールと、c) ホウ素化剤とを、活性材料を基準にした比率でb) が1重量部のa) 当たり約0.03から約0.35重量部になるようにしそしてc) としてのホウ素が1重量部のa) 当たり約0.005から約0.06重量部になるようにして、約50から約150℃の範囲の温度に加熱し、そしてその得られる混合物の中に水および/または固体が存在している場合、それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させる、ことを含む方法で、この多機能添加剤を生じさせる。好適には、これらの添加剤を生じさせる時に別の成分を用いるが、この成分は燐の無機オキシ酸または無水物であり、これを、活性材料を基準にした比率でこの成分としての燐が1重量部のa) 当たり約0.0005から約0.03重量部になるように用いる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 同時にか或はいずれかの順で、a) 塩基性窒素を含んでいる油性無灰分散剤と、b) アルコキシ化アルコールと、c) ホウ素化剤とを、活性材料を基準にした比率でb) が1重量部のa) 当たり約0.03から約0.35重量部になるようにしそしてc) としてのホウ素が1重量部のa) 当たり約0.005から約0.06重量部になるようにして、約50から約150℃の範囲の温度に加熱し、そしてその得られる混合物の中に水および／または固体が存在している場合、それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させる、ことを含む方法で生じる添加剤組成物。

【請求項2】 同時にか或はいずれかの順で、a) 塩基性窒素を含んでいる油性無灰分散剤と、b) アルコキシ化アルコールと、c) ホウ素化剤と、d) 燐の無機オキシ酸もしくは無水物とを、活性材料を基準にした比率でb) が1重量部のa) 当たり約0.03から約0.35重量部になるようにし、c) としてのホウ素が1重量部のa) 当たり約0.005から約0.06重量部になるようにし、そしてd) としての燐が1重量部のa) 当たり約0.0005から約0.03重量部になるようにして、約50から約150℃の範囲の温度に加熱し、そしてその得られる混合物の中に水および／または固体が存在している場合、それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させる、ことを含む方法で生じる添加剤組成物。

【請求項3】 請求項1の組成物を0.1から99.9重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を99.9から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【請求項4】 請求項1の組成物を0.1から50重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を50から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【請求項5】 請求項2の組成物を0.1から99.9重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を99.9から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【請求項6】 請求項2の組成物を0.1から50重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を50から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【技術分野】 本発明は、潤滑粘度を示す油内の多機能添加剤として有効性を示す、金属を含んでいない、ホウ素含有新規組成物に関するものである。加うるに、本発明は、潤滑粘度を示す油内の多機能添加剤として有効性を示す、金属を含んでいない、ホウ素と燐を含有している新規な組成物に関する。

## 【0002】

【背景】 ホウ素化した無灰分散剤を生じさせることは今までに報告されている。この主題に典型的な開示には米

国特許第3,087,936; 3,254,025; 3,281,428; 3,282,955; 3,284,409; 3,284,410; 3,338,832; 3,344,069; 3,533,945; 3,658,836; 3,703,536; 3,718,663; 4,455,243および4,652,387号が含まれる。

【0003】 米国特許第4,857,214号には、燐の無機酸もしくは無水物（それらの部分的および全体的硫黄類似物を含む）と、ホウ素化合物と、塩基性窒素および／またはヒドロキシル基含有無灰分散剤とを加熱することによって生じさせた油性を示す潤滑添加剤組成物が記述されている。上記添加剤は優れた抗摩耗／EP特性を示すと共に自動トランスミッション流体などの如き機能流体を含む潤滑油に抗酸化性を与える。加うるに、上記添加剤は改良されたゴムシール保護特性を示す。

## 【0004】

【発明】 本発明では新規で卓越した有用性を示す多機能添加剤を提供する。本発明の1つの態様では、同時にか或はいずれかの順でa) 塩基性窒素を含んでいる油性無灰分散剤とb) アルコキシ化アルコールとc) ホウ素化剤とを約50から約150℃の範囲の温度に加熱しそしてその得られる混合物の中に水および／または固体が存在している場合それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させることを含む方法で生じる多機能添加剤組成物を提供する。製造して濾過した後のこれらの新規な多機能添加剤は透明な混合物であり、これらには本明細書の以下に記述する比率の範囲内でホウ素を高レベルで含有させることができるにも拘らず、70℃の如き高温で長期間貯蔵した後でも曇りおよび固体を生じないままである傾向がある。

【0005】 別の態様では、同時にか或はいずれかの順でa) 塩基性窒素を含んでいる油性無灰分散剤とb) アルコキシ化アルコールとc) ホウ素化剤とd) 燐の無機オキシ酸もしくは無水物とを約50から約150℃の範囲の温度に加熱しそしてその得られる混合物の中に水および／または固体が存在している場合それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させることによって生じる多機能添加剤を提供する。これらの新規な添加剤は、米国特許第4,857,214号に記述されている添加剤が示す有利な特性を全部有していると共にこの上に示した貯蔵安定性を示す。これらの添加剤には本明細書の以下に記述する比率の範囲内でホウ素と燐の両方を高充填量で含有させることができるが、実際、相溶しないといった問題に直面することなく高温で長期間安定なままである。加うるに、これらは、成分b) が入っていない以外は同じ材料を同じ量で用いて同じ方法で製造した相当する添加剤と比較して、三菱水試験(Mitsubishi Wat

3

er Test) または ASTM D 2711 抗乳化試験で改良された性能を示す。

【0006】上記添加剤組成物のいずれかを0.1から99.9重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を99.9から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物が本発明の追加的態様である。別の態様は、上記添加剤組成物のいずれかを0.1から50重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を50から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物である。

【0007】以下に示す記述および添付請求の範囲から本発明の他の態様および特徴が更に明らかになるであろう。

#### 【0008】成分a)

本発明で使用可能な塩基性窒素含有無灰分散剤には、ヒドロカルビルスクシニミド類；ヒドロカルビルスクシナミド類；ヒドロカルビル置換こはく酸系アシル化剤を段階的にか或は一緒にアルコール類とアミン類の混合物および／またはアミノアルコール類と反応させることによって生じるヒドロカルビル置換こはく酸の混合エステル／アミド類；ヒドロカルビル置換フェノール類とホルムアルデヒドとポリアミン類とのマンニッヒ縮合生成物；並びに高分子量の脂肪族もしくは脂環式ハロゲン化物とポリアルキレンポリアミン類の如きアミン類とを反応させることによって生じるアミン分散剤などが含まれる。上記分散剤の混合物も使用可能である。

【0009】上記塩基性窒素含有無灰分散剤はよく知られている潤滑油添加剤であり、そしてそれらの製造方法は特許文献の中で広範に記述されている。例えば、ヒドロカルビル置換スクシニミド類およびスクシナミド類、並びにそれらの製造方法は、例えば米国特許第3,018,247；3,018,250；3,018,291；3,172,892；3,185,704；3,219,666；3,272,746；3,361,673および4,234,435号の中に記述されている。ヒドロカルビル置換こはく酸の混合エステル／アミド類は、例えば米国特許第3,576,743；4,234,435および4,873,009号の中に記述されている。ヒドロカルビル置換フェノール類とホルムアルデヒドとポリアミン類との縮合生成物であるマンニッヒ分散剤は、例えば米国特許第3,368,972；3,413,347；3,539,633；3,697,574；3,725,277；3,725,480；3,726,882；3,798,247；3,803,039；3,985,802；4,231,759および4,142,980号の中に記述されている。高分子量の脂肪族もしくは脂環式ハロゲン化物とアミン類とから得られるアミン分散剤およびそれらの製造方法は、例えば米国特許第3,275,554；3,438,757；3,454,555および3,565,804号の中に記述されている。

【0010】本発明に従って処理する無灰分散剤は、好

4

適にはヒドロカルビルスクシニミド、ヒドロカルビルこはく酸エステル／アミド、或はポリアミンとホルムアルデヒドとヒドロカルビルフェノールとのマンニッヒ塩基であり、ここでのヒドロカルビル置換基は、水添されているか或は未水添のポリオレフィン基であり、好適には数平均分子量（ゲル浸透クロマトグラフィーで測定した時の）が250から10,000、より好適には500から5,000、最も好適には750から2,500であるポリプロピレンまたはポリイソブテン基である。この無灰分散剤は、最も好適には、例えば Ethyl Petroleum Additives, Inc. および Ethyl Petroleum Additive s, Ltd. から HITEC (商標) 644 および HITEC (商標) 646 添加剤、特に HITEC (商標) 634 添加剤として商業的に入手可能なアルケニルスクシニミドの如きアルケニルスクシニミドである。本発明の実施で使用可能な他の適切な市販アルケニルスクシニミド類には、The Lubrizol Corporation 製の Anglamol 890, 894, 935, 6406, 6418 および 6420, Exxon Chemicals 製の ECA 4360, 5017 および 5025, 並びに Chevron Chemical Company 製の OLOA 373, 374 および 1200 などが含まれる。

【0011】この無灰分散液の製造では、一般に、米国特許第4,235,435号に記述されている種類のアミン類を含む塩基性窒素含有アミン類、或は塩基性窒素と追加的に1個以上のヒドロキシル基を含んでいるアミン類を用いることができる。通常、このアミン類は、ポリアルキレンポリアミン類、ヒドロキシ置換ポリアミン類およびポリオキシアルキレンポリアミン類などの如きポリアミン類である。ポリアルキレンポリアミン類の例にはジエチルトリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミンおよびジプロピレントリアミンなどが含まれる。純粋なポリエチレンポリアミン類を使用することも可能であるが、一般に、1分子当たり平均で約2.5から約7.5個の範囲の窒素原子、より好適には1分子当たり平均で約3から約5個の範囲の窒素原子を有する線状、分枝および環状のポリエチレンポリアミン類の混合物を用いるのが好適である。この種類の混合物は商品として入手可能である。ヒドロキシ置換アミン類にはN-ヒドロキシアルキルアルキレンポリアミン類、例えばN-(2-ヒドロキシエチル)エチレンジアミン、N-(2-ヒドロキシエチル)ピペラジン、および米国特許第4,873,009号に記述されている種類のN-ヒドロキシアルキル化アルキレンジアミン類などが含まれる。ポリオキシアルキレンポリアミン類には、典型的に、平均分子量が200から2500の範囲であるポリオキシエチレンおよびポリオキシプロピレンのジアミン類およびトリ

5

アミン類が含まれる。この種類の製品はJeffamine商標の下で入手可能である。

#### 成分b)

本発明の添加剤を生じさせる時に使用可能なアルコキシ化アルコール類には、油溶性を示すアルコキシ化アルコール類、アルコキシ化シクロアルコール類、アルコキシ化ポリオール類、アルコキシ化フェノール類およびアルコキシ化複素環式アルコール類が含まれ、これらは平均でアルコキシ基を1分子当たり約20個以下の数で含んでいる。これらのアルコキシ基はエトキシ、プロポキシ、ブトキシまたはペントキシかまたはこれらの2個以上の組み合わせであってもよい。しかしながら、エトキシで置換されているアルコール類が好適である。最良の結果を得るには、このアルコキシ化アルコールは20-25℃の範囲の周囲温度で液状でなくてはならない。このアルコキシ化アルコール類は油溶性を示すべきであることから、短鎖アルコール類の場合、これに含まれているアルコキシ基は好適には平均で1分子当たり少なくとも2個であるが、長鎖アルコール類の場合、これに含まれているアルコキシ基は1分子当たり1個以上であってもよい。与えられた何らかのアルコール内に存在しているアルコキシ基の平均数は、この製品が油溶性を示しそして好適には室温で液状である限り15または20の如く高くてもよい。適切なアルコキシ化アルコール類を生じるアルコール類の例には、C<sub>1-24</sub>アルコール類、C<sub>1-10</sub>シクロアルコール類、約16個以下の炭素原子と2-5個のヒドロキシル基を有するポリオール類、約16個以下の炭素原子と少なくとも1個のヒドロキシル基を有するポリオールエーテル類、フェノール、約16個以下の炭素原子を有するアルキルフェノール類、並びにヒドロキシ置換されている複素環式化合物、例えばテトラヒドロフルフリルアルコールおよびテトラヒドロピラン-2-メタノールなどが含まれる。

【0012】好適なものは、エトキシ化C<sub>8</sub>-C<sub>16</sub>アルコール、或は平均で1分子当たり1から10個の範囲のエトキシ基を有する上記アルコール類の2種以上から成る混合物である。特に好適なものは、平均で1分子当たり1から3個の範囲のエトキシ基を有するエトキシ化C<sub>12</sub>アルコールである。

#### 【0013】成分c)

ホウ素化剤として使用できる適切なホウ素材料には、ホウ素の酸、ホウ素の酸化物、ホウ素のエステル、ホウ酸アンモニウムおよび超ホウ素化分散剤、即ち高度にホウ素化されている上述した如き分散剤などが含まれる。アミノボラン類も使用可能であるが高価である。ホウ素のハロゲン化物も使用可能であるが、この分散剤にハロゲン含有量を与える一因になるか或はこの分散剤のハロゲン含有量を高くする傾向を示し、これらは両方とも望ましいものでない。適切なホウ素化剤の例には、ホウ素の

6

酸、例えばホウ酸、ボロン酸(boronic acid)、四重ホウ酸、メタホウ酸、ピロホウ酸、上記酸類のエステル、例えば1から20個の炭素原子を有するアルコール類および/または6から20個の炭素原子を有するフェノール類、例えばメタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール類、ペンタノール類、ヘキサノール類、シクロペンタノール、シクロヘキサノール、メチルシクロヘキサノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、フェノール、クレゾール類、キシレノール類などとのモノー、ジ-およびトリ-有機エステル、並びにホウ素酸化物、例えば酸化ホウ素および酸化ホウ素水化物などが含まれる。オルトホウ酸が本発明の実施で用いるに好適なホウ素化剤である。

#### 【0014】成分d)

本発明の好適な製品を生じさせる時に有効な燐の無機酸および無水物の例には、亜燐酸(H<sub>3</sub>PO<sub>3</sub>)、ピロ亜燐酸、燐酸、重亜燐酸、三酸化燐(P<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、四酸化燐(P<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)および無水燐酸(P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) (五酸化燐としても知られている)などが含まれる。上記化合物の2種以上から成る混合物も使用可能である。好適なものは亜燐酸(H<sub>3</sub>PO<sub>3</sub>)である。

#### 【0015】比率

典型的には、活性材料を基準にした比率でb)が1重量部のa)当たり約0.03から約0.35重量部になるようにしそしてc)としてのホウ素が1重量部のa)当たり約0.005から約0.06重量部になるように成分a)、b)およびc)を用いる。これらの比率は、好適には、同じ基準で1重量部のa)当たりb)が約0.08から約0.30重量部になりそしてc)としてのホウ素が約0.01から約0.05重量部になるような比率である。より好適な比率は、1重量部のa)当たりb)が約0.12から約0.25重量部になりそしてc)としてのホウ素が約0.012から約0.025重量部になるような比率である。特に好適な比率は、1重量部のa)当たりb)が約0.15から約0.20重量部になりそしてc)としてのホウ素が約0.015から約0.02重量部になるような比率である。この加熱する混合物の中に成分d)を含める場合、その比率は、活性材料を基準にして、d)としての燐が1重量部の成分a)当たり約0.0005から約0.03重量部、好適には約0.001から約0.025重量部、より好適には、約0.005から約0.02重量部、最も好適には約0.01から約0.02重量部存在するような比率である。「活性材料を基準」は、いずれかの成分と一緒に用いられている如何なる溶媒もしくは希釈剤の重量もこの比率の計算から排除することを意味している。

#### 【0016】反応条件

上に示したように、本発明の形態の1つにおいて、本発明は、塩基性窒素含有無灰分散剤を上記成分b)およびc)と一緒にか或は上記成分b)、c)およびd)と一

緒に加熱することによって透明で均一な添加剤組成物を生じさせることを伴っている。成分a)を仕込んだ後、使用すべき他の成分をその反応槽内容物と個別に加熱し、そしてこのようにすることで、その他の成分、即ち成分b)およびc)または成分b)、c)およびd)をいずれかの順でその反応容器に仕込んでその中で加熱してもよい。成分b)、c)およびd)を用いる場合、これらの成分をいずれかの順で副次的に1回以上組み合わせて仕込んで加熱してもよい(例えば、b)+c)の後d); b)+c)の後b)+d)など)。好適には、この使用すべき成分であるb)およびc)か或はb)、c)およびd)を成分a)と一緒に同時に加熱する。

【0017】この反応槽の内容物を、好適には攪拌しながら、適切な高温、即ち50から150℃、好適には約90から110℃の範囲、最も好適には約100℃の温度に加熱する。この温度に応じて全体時間を約1時間以下から約6時間以上に渡って変化させることができる。水が発生する場合、例えば成分c)としてホウ酸を用いる場合などは、減圧蒸留でその水を除去すべきである。その得られる混合物の中に何らかの固体が残存する可能性はあるが、その場合、好適には濾過でそれを除去することによって油溶性を示す透明な製品を生じさせる。

【0018】これらの反応体を混合して加熱することにより、この方法を無溶媒で実施することができる。しかしながら、ホウ酸の如き無機のホウ素化合物を成分c)として用いる場合、好適には、このホウ素化合物の初期溶解を容易にする目的で水を加える。この反応で生じる水および任意に添加した水を、その後、100-140℃の温度の真空蒸留で除去する。好適には、希釈油または溶媒、例えば芳香族炭化水素混合物などの中でこの反応を実施する。

【0019】塩基性窒素のモル量(原子比率)が、本無灰分散剤で与える塩基性窒素のモル量に等しいモル量になるように、任意に、この方法で用いる無灰分散剤混合物の中に追加的に塩基性窒素給源を含めることができる。好適な補助窒素化合物は、12から24個の炭素原子を有する長鎖の第一級、第二級および第三級アルキルアミン類であり、これらには、それらのヒドロキシアルキルおよびアミノアルキル誘導体が含まれる。この長鎖アルキル基は任意にエーテル基を1個以上含んでもよい。適切な化合物の例はオレイルアミン、N-オレイルトリメチレンジアミン、N-獣脂ジエタノールアミン、N、N-ジメチルオレイルアミンおよびミリスチル-オキシプロピルアミンなどである。

【0020】この反応を妨害しない、潤滑添加剤で通常に用いられている他の材料、例えば銅表面を保護する機能を果す低級(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル置換ベンゾトリアゾールを含むベンゾトリアゾールなどを添加することも可能である。

【0021】好適に用いるホウ素化合物(類)量の範囲

は、この混合物内に存在している塩基性窒素(補助窒素化合物で与えられ得る量はこの量の半分以下である)1モル当たり0.001モルから1モルである。燐化合物(類)を用いる場合、その量の範囲は、この混合物内に存在している塩基性窒素(この量は使用するホウ素化合物(類)のモル量より多い量である)1モル当たり0.001モルから0.999モルである。

【0022】水を用いる場合、その添加する水の量は特に重要でない、と言うのは、無機ホウ素化合物の溶解性を改良するに必要でなくなった時点でこの水を蒸留で除去するからである。この混合物の約1重量%以下の量が好適である。希釈剤を用いる場合、その量の範囲は、この混合物の10から50重量%である。銅保護剤を用いる場合、その量の範囲は一般にこの混合物の0.5から5重量%である。

【0023】以下に示す実施例は説明的实施例であり、ここでの部は重量部である。

【0024】

【実施例】

実施例1

HITEC(商標)2605添加剤(マンニツヒ塩基分散剤; Ethyl Corporation)が86.61部であり、エトキシ化ラウリルアルコール(Trycol 5966; Henkel Corporation)が10.07部であり、70%亜リン酸が2.61部であり、ホウ酸が5.90部でありそしてトリルトリアゾール(Cobratc TT-100)が0.81部である混合物を、攪拌しながら110℃で2時間加熱する。次に、この温度を140℃にまで上昇させ、40mmの真空をかけた後、この混合物をこの条件下に1時間保持することによって、この過程中に生じて来る水を除去する。次に、この生成物の濾過を行う。その得られる、固体が入っていない液状添加剤には、燐が約0.41%そしてホウ素が約1.03%含まれている。

【0025】実施例2

マンニツヒ塩基分散剤の代わりにHITEC(商標)7100添加剤(こはく酸エステル-アミド分散剤; Ethyl Corporation)を等量用いる以外は実施例1の操作を繰り返す。

【0026】その得られる添加剤組成物の燐含有量は約0.43%でありそしてホウ素含有量は約0.88%である。

【0027】実施例3

マンニツヒ塩基分散剤の代わりにHITEC(商標)646添加剤(GPC数平均分子量が約1300のポリイソブテンから生じさせたポリイソブテン置換基を有するテトラエチレンペンタミンスクシニド分散剤; Ethyl Corporation)を等量用いる以外は実施例1の操作を繰り返す。その得られる添加剤組成物の燐含有量は約0.44%でありそしてホウ素含有量は

約1.04%である。

#### 【0028】実施例4-6

亜リン酸を用いない以外は実施例1-3の操作を繰り返す。その得られる添加剤組成物はホウ素を同様な量で含んでいる。

#### 【0029】実施例7

使用するスクシニミドが、30%がミネラルオイルで70%がHITEC 634添加剤（トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり約1.8モルのモル比で無水ポリイソブテニルこはく酸を用いて生じさせたものであり、そしてこの無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約850から約1000の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものであるスクシニミド分散剤；Ethyl Corporation）の混合物である以外は実施例3の操作を繰り返す。

#### 【0030】実施例8

亜リン酸を用いない以外は実施例7の操作を繰り返す。

#### 【0031】実施例9

スクシニミド分散剤が70%入っている油溶液を83.3部、Trycol 5966を9.9部、ホウ酸を5.8部、亜リン酸を1.8部、TT-100を0.8部および水を0.7部用いて実施例7の操作を繰り返す。減圧蒸留で水を約2.5部回収する。

#### 【0032】実施例10-11

1つのケースとしてTrycol 5966をSterox ND（エトキシ化アルキルフェノール；Monsanto Corporation）に置き換えそして別のケースとしてTrycol 5940に置き換えて実施例9を繰り返す。同様な貯蔵安定性を示す生成物が得られる。

#### 【0033】実施例12-14

1つのケースとして亜リン酸を2倍量で用い、別のケースとしてTT-100を用いず、そして別のケースとしてTrycol 5966を2倍量で用いて再び実施例9を繰り返す。各ケースとも、貯蔵安定性を示す添加剤組成物が生じる。

#### 実施例15

分散剤がHITEC（商標）645添加剤（トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり約1.6モルのモル比で無水ポリイソブテニルこはく酸を用いて生じさせたものであり、そしてこの無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約850から約1000の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものであるスクシニミド分散剤；Ethyl Corporation）である以外は実施例9を繰り返す。

【0034】実施例1-3で製造した如き添加剤は、抗摩耗/極圧添加剤として有効であるばかりでなく更に調合ギアオイルおよびギアオイル添加剤パッケージに防錆

特性を与える貢献をする。実施例7および9-15で製造した如き添加剤は、例えば三菱水試験またはASTM

D 2711抗乳化試験で示されるように、良好な抗乳化性と水適合性を示す。実施例7で製造した如き添加剤もまた、調合ギアオイルの銅腐食抵抗力を改良する。更に、本発明の製品は良好な熱および酸化安定性を示し、従ってこれらには高い比率でホウ素単独か或は高い比率でホウ素と燐の両方を含有させているにも拘らず、曇りまたは沈降を生じることなく長期間に渡って貯蔵可能である。本発明の添加剤が示す非常に望ましい別の特徴は、これらに金属が全く含まれていない点である。

【0035】本発明の添加剤は、通常のギアオイル添加剤成分、例えば硫黄を含有している抗摩耗剤、燐を含有している極圧剤、銅腐食抑制剤、防錆剤、発泡抑制剤、酸化抑制剤、抗乳化剤などと組み合わせて使用可能である。これらはその仕上げギアオイルの中でそれらの通常の濃度で使用可能である。

【0036】本明細書で言葉「油溶性」を用いる場合、これは、考察下の物質が少なくともその意図した機能を果し得るに必要な最小濃度に到達するまでこの物質がその使用で選択したベースオイルに20℃で充分な溶解性を示すべきであることを意味している。好適には、この物質がそのベースオイルの中で示す溶解度は上記よりも本質的に高い。しかしながら、この物質はそのベースオイルの中に全比率で溶解する必要はない。

【0037】本明細書の上に示した各々および全ての米国特許資料は引用することによって充分に本明細書に組み入れられる。

【0038】本発明の特徴および態様は以下のとおりである。

【0039】1. 同時にa)またはb)の順で、a)塩基性窒素を含んでいる油溶性無灰分散剤と、b)アルコキシ化アルコールと、c)ホウ素化剤とを、活性材料を基準にした比率でb)が1重量部のa)当たり約0.03から約0.35重量部になるようにしそしてc)としてのホウ素が1重量部のa)当たり約0.005から約0.06重量部になるようにして、約50から約150℃の範囲の温度に加熱し、そしてその得られる混合物の中に水および/または固体が存在している場合、それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させる、ことを含む方法で生じる添加剤組成物。

【0040】2. 該無灰分散剤がスクシニミド無灰分散剤である第1項記載の組成物。

【0041】3. 該無灰分散剤が、トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり2.0モル未満であるが1.3モル以上のモル比でポリイソブテニルこはく酸系アシル化剤を用いて生じさせたポリイソブテニルスクシニミド無灰分散剤である第1項記載の組成物。

【0042】4. 上記無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約700から約1200の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものである第3項記載の組成物。

【0043】5. 該無灰分散剤が、トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり約1.8モルのモル比で無水ポリイソブテニルこはく酸を用いて生じさせたポリイソブテニルスクシニミド無灰分散剤であり、そしてここで、上記無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約850から約1000の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものである第1項記載の組成物。

【0044】6. c) がホウ素の酸である第1項記載の組成物。

【0045】7. b) が、1分子当たり平均で1から3個の範囲のエトキシ基を有するエトキシ化C<sub>8</sub>-C<sub>16</sub>アルコールである第1項記載の組成物。

【0046】8. b) が、1分子当たり平均で1から3個の範囲のエトキシ基を有するエトキシ化C<sub>12</sub>アルコールであり、そしてここで、c) がホウ酸である第1項または第5項記載の組成物。

【0047】9. 同時にa)かはいずれかの順で、a)塩基性窒素を含んでいる油性無灰分散剤と、b)アルコキシ化アルコールと、c)ホウ素化剤と、d)燐の無機オキシ酸もしくは無水物を、活性材料を基準にした比率でb)が1重量部のa)当たり約0.03から約0.35重量部になるようにし、c)としてのホウ素が1重量部のa)当たり約0.005から約0.06重量部になるようにし、そしてd)としての燐が1重量部のa)当たり約0.0005から約0.03重量部になるようにして、約50から約150℃の範囲の温度に加熱し、そしてその得られる混合物の中に水および/または固体が存在している場合、それらの両方を除去するか或はそれらのどちらかをその得られる混合物の中に存在させる、ことを含む方法で生じる添加剤組成物。

【0048】10. 該無灰分散剤がスクシニミド無灰分散剤である第9項記載の組成物。

【0049】11. 活性材料を基準にした上記比率が、b)が1重量部のa)当たり約0.12から約0.25重量部になるような比率であり、c)としてのホウ素が1重量部のa)当たり約0.012から約0.025重量部になるような比率であり、そしてd)としての燐が1重量部のa)当たり約0.005から約0.02重量部になるような比率である第9項記載の組成物。

【0050】12. a)とb)とc)とd)とを同時に加熱する第9項記載の組成物。

【0051】13. 該無灰分散剤が、トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり2.0モル未満であるが1.3モル以上のモル比でポリイソブテニルこはく酸系アシル化剤を用いて

生じさせたポリイソブテニルスクシニミド無灰分散剤である第9項記載の組成物。

【0052】14. 上記無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約700から約1200の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものである第13項記載の組成物。

【0053】15. 該無灰分散剤が、トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり約1.8モルのモル比で無水ポリイソブテニルこはく酸を用いて生じさせたポリイソブテニルスクシニミド無灰分散剤であり、そしてここで、上記無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約850から約1000の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものである第9項記載の組成物。

【0054】16. c) がホウ素の酸である第9項記載の組成物。

【0055】17. b) が、1分子当たり平均で1から3個の範囲のエトキシ基を有するエトキシ化C<sub>8</sub>-C<sub>16</sub>アルコールである第9項記載の組成物。

【0056】18. b) が、1分子当たり平均で1から3個の範囲のエトキシ基を有するエトキシ化C<sub>12</sub>アルコールであり、そしてここで、c) がホウ酸である第11、12および15項いずれか記載の組成物。

【0057】19. d) が亜燐酸H<sub>3</sub>PO<sub>3</sub>である第9、12および15項いずれか記載の組成物。

【0058】20. 該無灰分散剤が、トリエチレンテトラミンを用いると共にこのトリエチレンテトラミン1モル当たり約1.8モルのモル比で無水ポリイソブテニルこはく酸を用いて生じさせたポリイソブテニルスクシニミド無灰分散剤であり、そしてここで、上記無灰分散剤のポリイソブテニル基が、約850から約1000の範囲のGPC数平均分子量を有するポリイソブテンから誘導されたものであり、ここで、b)が1分子当たり平均で1から3個の範囲のエトキシ基を有するエトキシ化C<sub>12</sub>アルコールであり、c)がホウ酸であり、そしてここで、d)が亜燐酸H<sub>3</sub>PO<sub>3</sub>である第9項記載の組成物。

【0059】21. 活性材料を基準にした比率でb)が1重量部のa)当たり約0.15から約0.2重量部になるようにし、c)としてのホウ素が1重量部のa)当たり約0.015から約0.02重量部になるようにし、そしてd)としての燐が1重量部のa)当たり約0.01から約0.02重量部になるようにして、a)とb)とc)とd)とを同時に加熱する第20項記載の組成物。

【0060】22. 第1項の組成物を0.1から99.9重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を99.9から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【0061】23. 第1項の組成物を0.1から50重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を50

13

から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【0062】24. 第9項の組成物を0.1から99.9重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を99.9から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【0063】25. 第9項の組成物を0.1から50重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を50から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

14

【0064】26. 第20項の組成物を0.1から99.9重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を99.9から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

【0065】27. 第20項の組成物を0.1から50重量部そして潤滑粘度を示す少なくとも1種の油を50から0.1重量部含んでいる潤滑油組成物。

---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 1 0 M 133/44				
155/04				
159/12				
159/16				
// C 1 0 N 30:00	A			

(72)発明者 ドナルド・アール・ベル  
 アメリカ合衆国ミズーリ州63108セントル  
 イス・ウエストミンスタープレイス4387